21. 9. 2004

JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 1 1 NOV 2004

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2004年 3月30日

出 Application Number:

特願2004-099069

[ST. 10/C]:

[JP2004-099069]

出 願 人 Applicant(s):

関西ティー・エル・オー株式会社

PRIORITY DOCUMENT SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2004年10月29日

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office

```
【書類名】
               特許願
【整理番号】
              P043000073
【提出日】
              平成16年 3月30日
【あて先】
              特許庁長官 殿
【発明者】
   【住所又は居所】
              京都府宇治市五ケ庄一里塚1-97
   【氏名】
              伊藤 嘉昭
【発明者】
   【住所又は居所】
              京都府京都市北区鷹峯土天井町23番地の1
                                            北山スカイハイツ
               1 2 4
   【氏名】
              吉門 進三
【発明者】
   【住所又は居所】
              滋賀県大津市湖城が丘3番地18号
   【氏名】
              中西 義一
【発明者】
   【住所又は居所】
              兵庫県揖保郡揖保川町山津屋244
   【氏名】
              福島整
【特許出願人】
   【識別番号】
              899000046
   【氏名又は名称】
              関西ティー・エル・オー株式会社
【代理人】
   【識別番号】
              100068032
   【弁理士】
   【氏名又は名称】
              武石 靖彦
   【電話番号】
              (075)241-0880
【選任した代理人】
   【識別番号】
              100080333
   【弁理士】
   【氏名又は名称】
              村田 紀子
   【電話番号】
              (075)241-0880
【選任した代理人】
  【識別番号】
              100115222
  【弁理士】
  【氏名又は名称】
              徳岡 修二
  【電話番号】
              (075)241-0880
【選任した代理人】
  【識別番号】
              100124796
  【弁理士】
  【氏名又は名称】
              重本 博充
  【電話番号】
              (075)241-0880
【選任した代理人】
  【識別番号】
              100125586
  【弁理士】
  【氏名又は名称】
              大角 菜穂子
  【電話番号】
              (075)241-0880
【手数料の表示】
  【予納台帳番号】
              039273
  【納付金額】
              21,000円
【提出物件の目録】
```

【物件名】

特許請求の範囲

1

【物件名】 【物件名】

明細書 1

図面 1

【物件名】

要約書 1

【包括委任状番号】 0403996

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

低気体圧力密封筐体内に異極像結晶体を配置し、この結晶体を所定の時間サイクルをもって繰り返し熱励起することによって、結晶体から連続的に軟X線を発生させ、このX線をオゾン生成用原料ガスに照射してオゾンを生成することを特徴とするオゾン発生方法。

【請求項2】

密封した低気体圧力筐体内に配置した異極像結晶体を、熱励起しこれによって誘起される 強電界によって、この結晶体から発生する荷電粒子及びX線をX線ターゲットに投射し、こ のターゲットから励起される2次X線をオゾン生成用原料ガスに照射してオゾンを生成す ることを特徴とするオゾン発生方法。

【請求項3】

異極像結晶体を複数個対向させて配置し、各結晶体の熱励起サイクルを同相または逆相的 に制御することを特徴とする請求項1または2の何れかに記載のオゾン発生方法。

【請求項4】

低気体圧力密封筐体内に、異極像結晶体とこの結晶体を繰り返し加熱、冷却する熱サイクル付与手段とを配置し、前記筐体の外側又は内側にオゾン生成用原料ガス容器を隣接して併設し、前記異極像結晶体から発生する軟 X 線を X 線透過窓を介して前記原料ガス容器に照射するように構成したことを特徴とするオゾン発生装置。

【請求項5】

低気体圧力密封筐体内にX線ターゲットを設け、異極像結晶体から発生する軟X線および 荷電粒子線をこのX線ターゲットに投射し、これによってターゲットから発生する2次X 線をオゾン生成用原料ガス容器に照射することを特徴とする請求項4に記載のオゾン発生 装置。

【請求項6】

異極像結晶体の周りにホローカソードを設けたことを特徴とする請求項4または5に記載のオゾン発生装置。

【請求項7】

低気体圧力密封筐体内に、少なくとも2個の異極像結晶体を空間を隔てて対向配置し、各結晶体に熱サイクル付与手段を設けるとともに、各結晶体の対向空間の側方に環状のオゾン化室を設け、それぞれの結晶体を同相又は逆相的に熱サイクル励起することを特徴とする請求項4または5に記載のオゾン発生装置。

【請求項8】

異極像結晶体を円弧面に沿って複数個配置し、前記円弧の中心部にオゾン化室を設けたことを特徴とする請求項4に記載のオゾン発生装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】オゾン発生方法及びオゾン発生装置

【技術分野】

[0001]

この発明は、飲料水や食品、医療器具その他各種生活用品の滅菌処理・消毒などの外、病院、学校、動物飼育場、工場などにおける空気浄化・脱臭脱色・除菌、品質管理或いは酸化処理などに使用されるオゾンを簡便に効率よく発生するための、新しい方式のオゾン発生方法および装置に関するものである。

【背景技術】

[0002]

オゾンを発生させる手段としては、酸素を含む気体を紫外線やレーザーで励起する方式、無声放電と呼ばれる高電圧放電による方式などが広く用いられており、最近はX線によるオゾン化方式も知られている。

これらの従来の方式は数十万ボルトの高圧大電力の電源装置が必要であり、食品店やレストラン・ホテル・調理場などで手軽に利用できるものではない。

この発明は、X線を利用するオゾン発生方式ではあるが、従来のようなX線管を使用することなく、全く異なった発想のX線励起によるオゾン発生方法および装置を提供するものである。

【特許文献1】特開平8-33886号公開公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0003]

この発明は、X線管球や高圧電源を一切使用しない小形で簡便なX線発生方式を採用したオゾン発生方法および装置であって、ニオブ酸リチウム(LiNbO3)、タンタル酸リチウム(LiTaO3)などの異極像結晶体の熱励起によるX線を効果的に利用したオゾン発生方式である。即ち異極像結晶体の熱励起によって発生する面状発散X線を連続的・効果的にオゾン生成に寄与させるための新規な方法および装置を提供したもので、異極像結晶体を所定の周期で繰り返し加熱・冷却する「熱サイクル励起」という新しい励起方式を採択しこれをオゾン生成装置と有機的に組み合わせることによって、高電圧設備などを必要としない小形で簡単なオゾン発生方式を提案するものである。

【課題を解決するための手段】

[0004]

上記課題を解決するため、請求項1に記載した発明は異極像結晶体を、低気体圧力筐体内において所定の時間サイクルで繰り返し熱励起することによって、結晶体から連続的に軟X線を発生させ、このX線をオゾン発生用原料ガスに照射してオゾンを生成する方法を提供する。

[0005]

請求項2に記載した発明は、低気体圧力筐体内に配置した異極像結晶体を熱励起することによって誘起される強電界によって、結晶体から発生する荷電粒子線・X線を一旦X線ターゲットに衝突させ、このターゲットから更に2次X線を発生させて、このターゲット材からの特性X線をオゾン生成に利用する方法を提供する。

[0006]

請求項4に記載した発明は、前記のオゾン発生方法を具現化するための装置の発明で、 異極像結晶体の熱サイクル励起手段とオゾン化室との新しい組み合わせ構造を備えたオゾン発生装置を提供する。

【発明の効果】

[0007]

本発明のオゾン発生方法及び装置は、小形の異極像結晶体を、所定の熱サイクルをもって繰り返し加熱冷却するだけで、連続的な軟X線を面状または三次元方向に発生させ、この面状放射X線をもってオゾン化を行うので、高圧高電位の電源装置などは一切必要なく

、家庭や病院・店舗・調理場などで簡単に利用できる外、使用するX線も低エネルギーの 軟X線であるので、大気中で直ちに吸収され消滅し、人体その他への放射線障害などの影響も全くない。

又実施態様例のように、小形の異極像結晶を複数個組み合わせて軟X線を集中的にオゾン化室に投射することにより、オゾン化効率を更に向上させることができ、大量のオゾンを連続的に発生させることができる。

[0008]

更に、図2のように異極像結晶体とオゾン化室との間に、銅、アルミニウム、マグネシウム、バナジウムなどの金属対陰極板またはその薄膜からなるX線ターゲットを配置し、異極像結晶体の熱励起により発生する荷電粒子線・X線をこのターゲットに照射して得られる2次X線(特性X線)および連続的なエネルギーを持つ白色X線をオゾン化室に投射することにより、オゾン化に最適な特有の波長の特性X線を選択的に発生させ、オゾン反応を効率的に促進させることも可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

[0009]

[実施例1] 図は、本発明のオゾン発生方法及び装置の基本概念を説明する図で、1は3~6 P a 程度の低気圧域を囲む筐体、2 は異極像結晶体でニオブ酸リチウム(Li Nb03)などの単結晶板で、正の電気面を上(オゾン室に対向する方向)にして設置される。3 は前記結晶板2を所定の周期で加熱・冷却するための温度サイクル付与ステージ(熱サイクル付与ステージ)で、日は加熱用ヒータ線、P は冷却水還流パイプを示す。5 はこのヒータの通電・遮断、冷却水の供給・遮断を制御する制御部、6 はオゾン化室を構成する容器で、図の左側から酸素(02)を含むガスが導入され、容器6内でオゾン化反応が進行し、右側からオゾン(03)を含むガスが放出される。4 は結晶板2 と温度サイクル付与ステージ3 との間に設置された低仕事関数をもつ活性層で、酸化マグネシウム(Mg0)または酸化カルシウム(Ca0)などが適当である。この活性層4 はステージ3のブロックの上面に銀ペーストなどの接着層を介して導電接着される。

[0010]

温度サイクル付与ステージ3は、ヒータHによって例えば約200℃程度まで昇温され、その後ヒータの通電が遮断され、同時に冷却水がパイプPに還流され、例えば常温程度まで急冷されるという動作が一定のサイクルで繰り返される。この昇温・降温サイクルは、温度制御部5によってプログラム制御される。

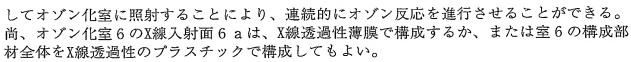
[0011]

これにより、異極像結晶板 2 は活性層 4 を介して 2 0 0 $\mathbb C$ から常温まで昇温・降温が繰り返され、結晶 2 内の自発分極が進行する結果、結晶の上面及び下面が交互に高電位面となる。これによって結晶のまわりに強電界が発生し、この強電界による励起作用によって結晶の表面からこの結晶を構成する元素に由来する特性X線が発生する。この場合の温度サイクルは、5 分ないし 1 0 分間隔で加熱・冷却が繰り返される程度の周期が望ましい。本発明者等の実験によれば、LiNb03結晶の場合、降温過程で結晶構成元素即ちニオブ(Nb)・リチウム(Li)酸素(0)の特性X線と共に連続的なエネルギーを持つ白色X線が発生する。これらの低エネルギーのX線は結晶表面から図のxで示すように各方向に放射状に発生し、筐体 1 内が低気体圧雰囲気であるので、筐体 1 の上部のX線透過窓 1 a(例えば、この部分だけベリリウム膜となっている)を通して、オゾン化室 6 へ到達する。又、結晶体 2 の前記熱励起に伴う強電界によって活性層 4 からも電子などの荷電粒子が放出され、この電子が前記電界によって加速され、筐体 1 内の微量のガス分子と衝突してX線を発生するので、このX線もオゾン化室におけるオゾン化反応に貢献する。

$[0\ 0\ 1\ 2]$

更に、結晶周辺に放出された電子は、結晶の温度サイクルの変化に伴う電位の変化によって結晶自体にも衝突し、これによっても結晶から特性X線が発生する。

このようにして、結晶板に昇温・降温の温度サイクルを与えることによって、その表面 、側面または下面から連続的に特性X線、白色X線が発生するので、これをX線透過窓を通



[0013]

又、このようにして発生したX線は、3~6KeVの低エネルギーの軟X線であるので、 オゾン化室(通常大気圧)でオゾン反応に関与した後、直ちに消滅し、室外まで到達する ことは殆どない。従って、放射線障害や放射線防護を考える必要はない。

[0014]

尚、図の例は、1、2、3、4 で示した異極像結晶板の熱ササイクル励起によるX線発生部を、オゾン化室 6 の上方に更に1 個設置した例を示したもので、オゾン化室に2 倍のX線を照射して、オゾン化効率を高めたものである。この場合一方の結晶板2 が昇温サイクルにあるとき、他方の結晶板2 は冷却サイクルになるように、熱励起サイクルを逆相的に制御すれば、交互にX線がオゾン生成部に投射されるので、効率的にX線を連続的に発生させることができる。勿論2 個の結晶体の熱励起サイクルを同相で制御することも可能であり、この場合は同一タイミングに2 倍のX線が間歇的にオゾン生成部に照射される。

オゾン化室が更に大きい場合は、このX線発生部を四方、六方に設置すれば、より多量のオゾンを連続的に発生できることは明らかである。この場合活性化層 4 は、特に設けなくても本発明の目的は達せられる。

[0015]

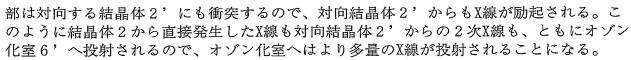
[0016]

尚8はグラファイト(絶縁体)などのホローカソード管で、前記結晶から放出された荷電粒子をこのホローカソード8による電界によって円滑にターゲットに指向誘導し、結晶から発生した電子線・X線による2次X線の発生を助長する。このカソード管は他の絶縁性材料、半導体物質、あるいは金属でもよい。

[0017]

[実施例3]

図3、4は、低気体圧力筺体1内に2個の異極像結晶体2、2、を対向的に配置しそれぞれの結晶体を、熱サイクル励起するためのステージ3、3、をその基面に設けたもので、筐体1の外側の側部に矩形断面の環状オゾン化室6、を筐体を取り囲むように配置した例である。この例では、熱サイクル励起ステージ3、3、はペルチエ効果素子で構成し、その付勢電流を制御回路9によって周期的に正逆方向に切換えることにより、結晶体を繰り返し加熱・冷却するようにする。この場合、対向する結晶体の一方側2が冷却サイクルにあるとき、他方側結晶体2、が加熱サイクルにあるようにペルチエ電流を逆位相的に制御する。即ち結晶体2が冷却過程にあるときはこの結晶体2から特性X線、連続的なエネルギーを持つ白色X線が放射状に発生し、これがX線透過窓6、aを通してオゾン化室6、内に投射され、室内ガスのオゾン化反応に寄与する。またこれによって発生したX線の一



[0018]

次のサイクルにおいて、結晶体 2 が昇温過程、 2 、が降温過程となったときは、結晶体 2 、から軟X線が放射状に発生し、これがオゾン化室 6 、に投射され、同時に前述と同様 にこのX線が対向する他方の結晶体 2 にも衝突し、更にこれからも 2 次X線が放射されるので、これらが合わさってオゾン化が促進される。

[0019]

このように一方の結晶体の加熱・冷却サイクルと他方の結晶体の冷却・加熱サイクルを 逆位相的に制御すれば、相乗作用により多量のX線を連続的に発生させることができるの で、オゾン生成効率は一層向上する。又若し両結晶体の熱励起サイクルを同相制御すれば 、約2倍のエネルギーの軟X線を間歇的に発生させることができる。尚、図4の斜視図で は熱サイクル励起ステージ3、3、真空(低気体圧力)筐体1及び制御回路9の図示を 省略したが、各結晶体にはペルチエ効果素子からなる加熱冷却ステージが付設されそれぞ れ制御部9からその加熱・冷却タイミングがコントロールされる。この場合筐体1はドラ ム缶状に形成されている。

[0020]

[実施例4] 図5は、2個の異極像結晶体2b、2b'を点0を中心とする円弧面に沿って対向配置し、中心付近にオゾン化室6"を設けた例である。各結晶体の熱サイクル励起は、便宜上ヒーター線h、h'で行う例を示した。この場合、各結晶体からの発生X線は折れ線矢印 x で示したように、略中心0の方向に集中指向するので、オゾン化室6"にはより高い密度でX線を投射できる。この場合、オゾン化室には紙面に垂直方向にオゾン原料ガスが導入・排出される。又、パイプ状オゾン化室の管材は、X線透過性のプラスチック又はアルミなどX線透過性の材料が選ばれる。

[0021]

この場合、図では結晶板2個を円弧面に沿って対向配置したが、4個を略90°間隔で円弧面に対向配置してもよく、また更に多数の異極像結晶板を円弧面に沿って配置してもよい。また対向結晶板の一対はニオブ酸リチウム、他の一対はタンタル酸リチウムの単結晶板で構成し、それぞれの結晶板の熱励起サイクルの周期を同相、逆相又は異なった位相で加熱・冷却するように制御するなど、オゾン室の容量、原料ガスの組成・流量などに合わせて最適な条件でX線励起できるように工夫してもよい。勿論、結晶板は図3に示したような平行平板状のものでもよく、小さな平板結晶を多数円弧面または球面に沿って配置することにより、発生X線を中心方向に指向させることができる。尚オゾン化室は真空または低気体圧力筐体内に配置され、筐体外から導管を介して原料ガスを連続的に供給し、発生したオゾンガスは排気管を介して滅菌室や消毒室へ供給される。

[0022]

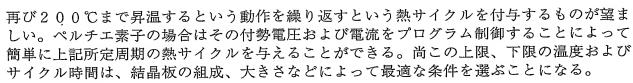
「実施例の展開〕

以上の実施例において、X線発生源となる異極像結晶体としては、LiNbO3、LiTaO3、硫酸グリシン(TGS)が実用的であるが、他の異極像結晶体(焦電結晶体)も利用できる。

またその大きさはできるだけ面積の広いものが望ましいが製造コストなどから、直径 30~60mm程度の円板状又は角形の結晶板で十分であり、その厚みは熱励起の際の熱伝播効率の面から薄いものが望ましく $1\sim5$ mm程度のものが実用的である。このようなものであれば比較的簡単に市販で入手できるので汎用性も高くなる。

[0023]

次に本発明の要部となる熱サイクル励起のための昇温、降温ステージは、通常の熱線ヒータ又はシーズヒータと冷却水又は冷媒ガス還流装置を組み合わせた装置が汎用的であるが、ペルチエ素子を利用した加熱冷却装置も有効である。これらによる熱励起サイクルは例えば結晶板を常温からキューリー点(LiNbO3の場合は1200C)以下の適当な温度例えば200Cまで約 $5\sim10$ 分で昇温し、ついで同じタイミングで常温程度まで降温し、



[0024]

次にこの結晶板を収容する低気体圧力筐体の真空度は、 $3\sim6$ P a 程度の低圧で十分であり、これ以上の高真空は必要でない。図1のようにオゾン生成部をX線発生筐体1の外側へ配置する場合は、この筐体の大きさは結晶板の大きさより若干大きい程度でよいので、筐体の大きさは1 0 0 mm角程度の小型のものでよい。

[0025]

又結晶板自体は接地電位に維持され、対向配置した場合でもこの間に電位を印加することは必要でないので、高電圧設備などは全く必要でない。従って店舗や病院、畜舎、レストラン、ホテルなどでも簡単に設置可能である。もちろん結晶板を熱サイクル励起するためにペルチエ効果素子を使用する場合でも、大型の電源設備は必要でない。

[0026]

さらに、オゾン生成用原料ガス容器は、通常は大気圧付近で使用されるのでそれほど強靭な材質でなくてもよいが、X線刺激やオゾン反応に伴って不純分子が発生しないような化学的に安定な材料が望ましい。

[0027]

また実施例で説明したように、X線が入射する部分はX線透過性材料とするのが通常であるが、別の態様として容器のX線入射部にX線ターゲットの性質をもたせることも考えられる。この場合は、オゾン容器全体またはX線のあたる部分を薄い銅膜・アルミ膜などで構成してこの部分から内側へでる2次X線をオゾン反応に寄与させることになる。

[0028]

「変形例]

以上主として異極像結晶体の熱励起による発生X線をオゾン化反応に利用する方式について述べたが、X線励起の手法として異極像結晶を電気的、機械的に刺激してX線を励起させることも可能である。図6は真空(低気体圧力)筐体内に載置した異極像結晶体2の上面(正の電気面)にニオブ、タンタルなどの導電性膜10を貼りつけ、これと結晶の負の電気面(接地側)との間に制御回路11によって、交番電圧を印加し、結晶自体に電歪現象による周期的な歪みを与え、この歪による自発分極によって励起されるX線をオゾン発生に利用するものである。前記電歪を周期的に付与するための交番電圧の極性反転周期は、60サイクル、その電位は1kV程度で、電流は殆ど流さなくてよい。勿論他の機構・加圧手段などで結晶に周期的歪を付与することも可能である。オゾン生成容器、X線ターゲット、ホローカソード管、電源制御部などは前述の実施例と同じものでよい。

図の例は熱サイクル励起手段3とこの電歪サイクル励起手段10,11とを併用してより効率的にオゾンを発生させる例で、両者を同時に或いは切り換えて駆動してもよく、また何れか一方だけのX線でオゾンを発生させるようにしてもよい。この場合は一方の手段は省略できる。

[0029]

以上のように本発明のオゾン発生方法、装置は、小規模の殺菌・滅菌需要に即応して手軽にオゾンが得られるという特徴をもつものである。

【図面の簡単な説明】

[0030]

【図1】本発明のオゾン発生方法および装置の基本概念を説明する図で、オゾン化室に対して2個の熱励起X線発生源を対向設置した例である。

【図2】異極像結晶の熱励起によるX線および荷電粒子線をX線ターゲットおよびホローカソードに照射し、これから発生する2次X線によってオゾンを発生させる例を示す例である。

【図3】低圧密封筐体内に2個の異極像結晶体を対向配置し、双方からの熱励起X線

を相乗的にオゾン生成に寄与させるようにしたオゾン発生装置の断面図である。

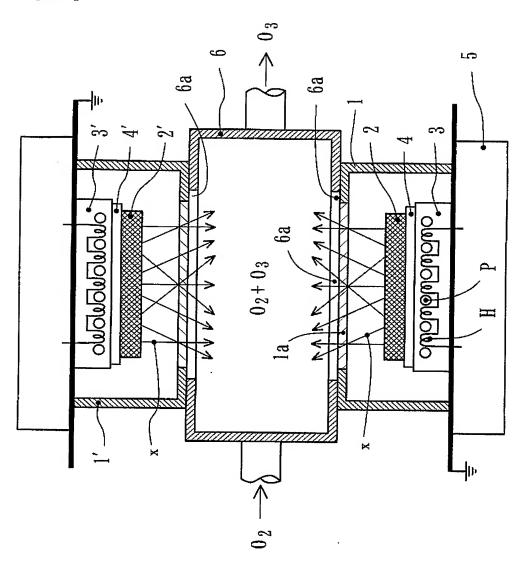
- 【図4】図3のオゾン発生装置の動作原理説明用斜視図である。
- 【図5】複数の異極像結晶板を円弧面に沿って配置したオゾン発生装置の例を示す動作説明図である。
- 【図6】異極像結晶体を熱サイクル励起と電歪サイクル励起を併用または切替え的に使用できるようにした実施例の原理説明図である。

【符号の説明】

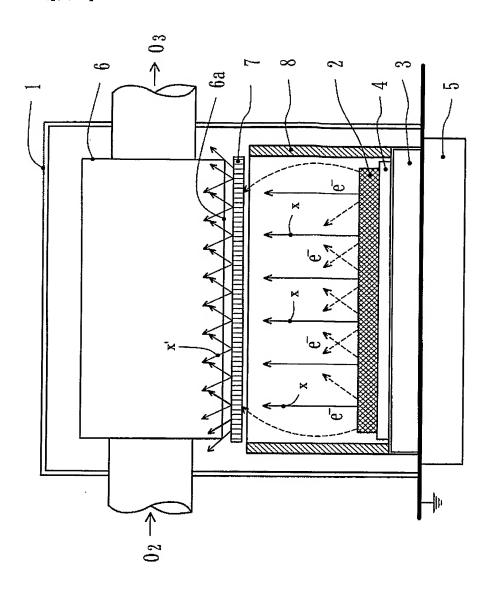
[0031]

- 1 真空(低気体圧力)筐体
- 2 異極像結晶
- 3 熱サイクル付与ステージ
- 4 活性層
- 5 熱サイクル励起用制御部
- 6 オゾン生成用原料ガス容器(オゾン発生部)
- 7 X線ターゲット
- 8 ホローカソード管
- 9 ペルチエ電流制御回路
- 10 電歪用電位を印加するための電極膜
- 11 電歪サイクル励起用制御部

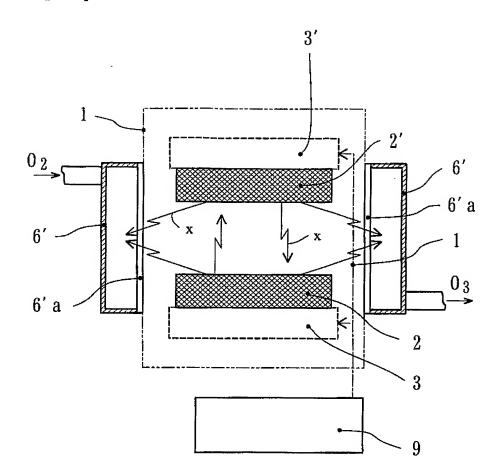
【書類名】図面 【図1】



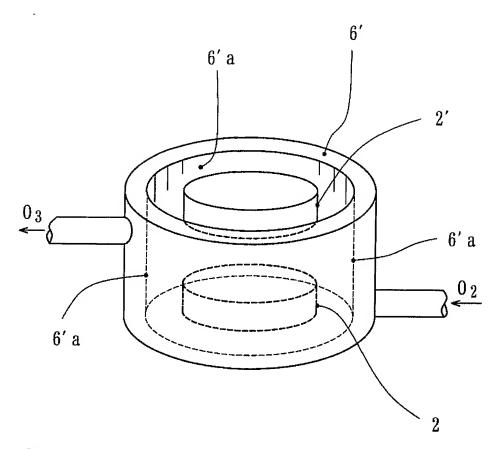
【図2】



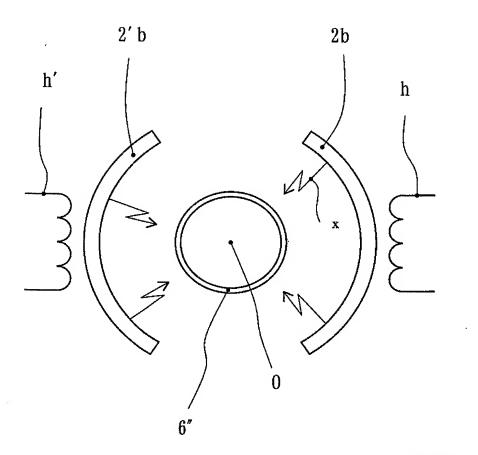
【図3】



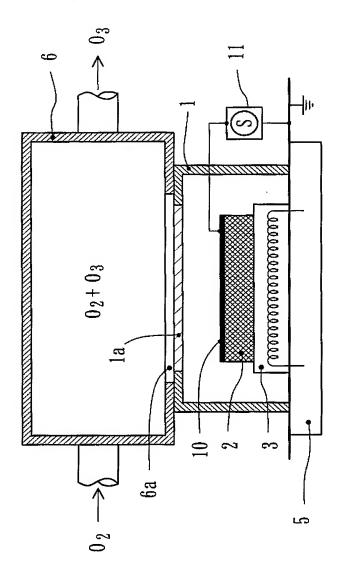
【図4】



【図5】







【書類名】要約書

【要約】

【課題】 特別な大型電源を必要としない小型で汎用性に優れたオゾン発生方法および装置を提供する。

【解決手段】 LiNbO3、LiTaO3などの異極像結晶体を低気体圧筐体内に配置し、これを所定の時間サイクルをもって繰り返し熱励起することにより、この結晶体から発生する軟X線でオゾン生成用原料ガスを励起してオゾンを発生させることを特徴とするオゾン発生方法および装置。結晶体を複数個対向配置して、オゾン化効率を向上させる方法および装置

【選択図】 図1

特願2004-099069

出願人履歴情報

識別番号

[899000046]

1. 変更年月日

2002年 8月 2日

[変更理由] 住 所

住所変更

京都府京都市下京区中堂寺粟田町93番地

関西ティー・エル・オー株式会社